

基于铁磁介质的左手材料

李扬¹, 刘传宝¹, 白洋¹, 乔利杰¹, 周济²

1. 北京科技大学新材料技术研究院, 北京 100083

2. 清华大学材料学院, 北京 100084

摘要 超材料是近十几年来国际研究的热点, 其中介电常数和磁导率同时为负数的左手材料是最典型一类代表, 具有反向波、负折射系数等反常物理特性。左手材料虽然物理本质是等效连续介质, 但实际上都是各种人工金属结构, 物理特性决定于结构参数而非组成材料的特性。直接利用功能材料的本征物理特性产生负电磁参数进而获得左手特性, 可以大大丰富左手材料的物理特性, 并且将其跳出超材料设计的范畴, 是左手材料领域中的特色研究领域。其中, 基于铁磁介质的左手材料近年来已有较多研究。本文对基于铁磁介质的左手材料的研究进展做一综述。

关键词 左手材料; 铁磁介质; 负磁导率; 负介电常数; 负折射率

电磁波在介质中的传播主要取决于介质的介电常数 ϵ 和磁导率 μ 。对于自然界中的大部分材料来说, 其 ϵ 和 μ 同时为正。有少部分材料在某些状态下会出现 ϵ 或 μ 为负的现象, 如等离子体及位于特定频段的部分金属。当 ϵ 或 μ 其一为负时, 折射率 $n = \sqrt{\epsilon\mu}$ 为虚数, 这意味着在这种材料中电磁波只能是消逝波(evanescent waves), 因此电磁波只能在折射率为实数的材料中传播。介电常数和磁导率同时为负的材料构想起源于苏联物理学家 Veselago 对于左手材料的理论推测^[1]。Veselago 指出, 当介电常数和磁导率同时为负时, 电场矢量、磁场矢量以及波矢之间不再遵循经典电磁学基础的右手定则, 而呈现出左手关系。这种奇特的物理特性带来了许多反常效应, 如负折射效应、逆多普勒效应、反向波特性和完美透镜效应以及反常古斯汉森位移等, 但是此后 30 余年, 人们在各种天然材料中都没有找到 ϵ 和 μ 同时为负数的材料。直到 1996 年, Pendry 等先后指出周期排列的细导线阵列能够在微波波段展现出负介电常数效应^[2]和周期放置的开口谐振环(SRRs)阵列可以代替磁性材料在微波波段展现出负磁导率效应^[3]。此后, Smith 等^[4]设计了周期性排列的细导线和 SRRs 组合阵列, 利用人工金属结构组成了一维的左手材料和二维的左手材料, 并通过棱镜实验验证了异常折射的现象, 即负折射率现象。此后国际上产生了左手材料的研究热潮, 左手材料的实验证明还被《Science》评为 2003 年十大科学进展之一。

这种具有人工设计的结构、具有天然材料所不具备的超常物理性质的复合材料, 被称作超材料(metamaterial)。超材

料一经出现马上成为近十几年来国际研究的热点, 在物理、材料、电磁、光学领域受到了极大关注, 其中左手材料是出现最早、最典型的一类超材料。

传统的左手材料都是各种金属结构组成的超材料, 其反常物理特性不取决于组成材料的本征性能, 而是由超材料的人工结构单元决定, 且其结构单元尺度远小于与其作用的电磁波波长。因此, 超材料虽然看起来是各种人工结构单元, 但其物理本质是有效连续介质。左手超材料的频率, 取决于其结构尺寸, 因此频率向光频提升对加工技术的要求将越来越高; 对于常规的基于金属结构的超材料而言, 结构一旦固定, 其性质及其频率关系便已确定, 很难通过外场实现调制, 限制了其在器件中的应用; 而且金属的高损耗也给左手特性的实际应用带来的很大的困难。近几年利用功能材料本征物理特性中的各种电磁共振产生负 ϵ 或 μ 进而获得左手特性逐渐形成一个富有特色的研究领域。左手材料将不再完全依赖于超材料设计, 而且引入功能材料可以进一步丰富左手材料及器件的多功能性。其中, 利用铁磁介质的铁磁共振实现负 μ 构造左手材料是其中最典型的一类, 近几年来受到了越来越多的关注。

1 铁磁介质中的负磁导率

铁磁介质中的负磁导率最早是由 Thompson 在 1955 年通过铁磁体在外加磁场的情况下实现的。铁磁物质的磁化强度 M 在有效磁场 H_{eff} (包括外加恒磁场、交变磁场、退磁场、各向异性等效场、交换作用等效场等)的作用下, 围绕 H_{eff} 作右

收稿日期: 2016-04-11; 修回日期: 2016-04-20

基金项目: 中组部“国家高层次人才特殊支持计划青年拔尖人才”计划项目

作者简介: 李扬, 博士研究生, 研究方向为超材料设计, 电子信箱: b20140189@xs.ustb.edu.cn; 白洋(通信作者), 研究员, 研究方向为功能陶瓷及超材料,

电子信箱: baiy@mater.ustb.edu.cn

引用格式: 李扬, 刘传宝, 白洋, 等. 基于铁磁介质的左手材料[J]. 科技导报, 2016, 34(18): 54-65; doi: 10.3981/j.issn.1000-7857.2016.18.005

旋进动。磁化矢量 M_s 的宏观经典运动方程可用朗道-栗弗希茨方程来描述:

$$\frac{dM}{dt} = -\gamma M \times H_0 + \frac{\alpha}{M} M \times \frac{dM}{dt} \quad (1)$$

其中, α 为阻尼系数, γ 为旋磁比。

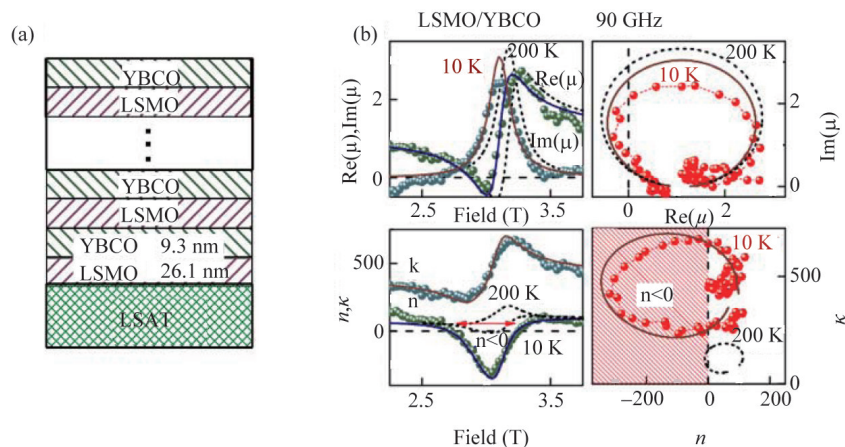
当铁磁材料同时受到两个互相垂直的磁场, 即恒定磁场 H_0 和微波磁场 h 的作用后, 恒定磁场使磁矩绕它的方向进动, 而微波磁场 h 迫使磁矩随着 h 的作用而改变进动状态。微波磁场对进动的磁矩不断补充能量, 当微波磁场的频率小于磁矩的进动频率时, 微波磁场提供的能量不足以补充阻尼消耗的能量, 进动仍会衰减, 最终完成静态磁化。当外加交变磁场的频率与 M 进动的固有频率相等时, 体系发生铁磁共振。如果外加磁场的频率继续增大, 会使得复合磁导率的实

部, 也就是磁化功, 与磁场方向相反, 从而产生了负磁导率。因此, 负磁导率出现的位置通常在略大于铁磁共振频率的频率^[5,6]。

2 基于铁磁介质的左手材料

2.1 构造基于铁磁介质的左手材料

2005年, Pimenov等^[7]在 $(LaAlO_3)_{0.3}(Sr_2LaAlTaO_6)_{0.7}$ (LSAT) 基底上用多目标高压溅射法沉积钇钡铜氧层和镧锶锰氧层形成 A/B 型的超晶格结构(图 1^[7]), 利用超导体 $YBa_2Cu_3O_7$ 的等离子共振实现负介电常数, 铁磁材料 $La_{0.98}Sr_{0.11}MnO_3$ 的铁磁共振实现负磁导率, 在温度为 10 K、外加磁场为 2.9~3.1 T 的情况下, 该结构在 90 GHz 频率处具有双负左手特性。



(a) 超晶格结构钇钡铜氧层和镧锶锰氧层超晶格结构; (b) 超晶格结构在 10 K 和 200 K 温度下不同场强下的磁导率结果

图 1 钇钡铜氧-镧锶锰氧层状超材料结构及双负特性

Fig. 1 LSMO/YBCO metamaterial and its double negative property

美国东北大学 Harris^[8]提出了钇铁石榴石(YIG)铁氧体片与金属铜线阵列复合可以实现负折射, 他们构造了在钇铁石榴石两侧沉积总厚 400 μm 的 YIG 薄膜和 8 根相隔 1 mm 周期性排列的金属铜线的复合结构^[9]。这种左手复合结构具有可磁场调谐, 宽频带, 低损耗的特点。他们展示了在外加磁场的调谐下从 18~23 GHz (K 波段) 范围内的左手传输, 并且随着外加磁场的增大, 通带峰的位置向高频移动, 带宽变宽。

在复合左手材料中, 除了利用金属线等纵向等离子共振产生负介电常数, 还可以利用高介电材料的 Mie 谐振产生负介电常数构造左手材料。周济等^[10]设计了在 FR4 基板两侧平行排列 YIG 棒和钛酸锶钡棒(BST)阵列的铁电/铁磁复合左手材料结构。BST 是铁电材料, 具有远高于环境介质的介电常数, 易于激励 Mie 谐振, 在第 1 级电谐振附近具有负介电常数。将其与铁氧体的负磁导率有效结合后, 可以产生左手特性。

2.2 基于铁磁介质的左手材料的可调谐特性

SRRs 作为人工设计结构被用于左手材料中提供负磁导

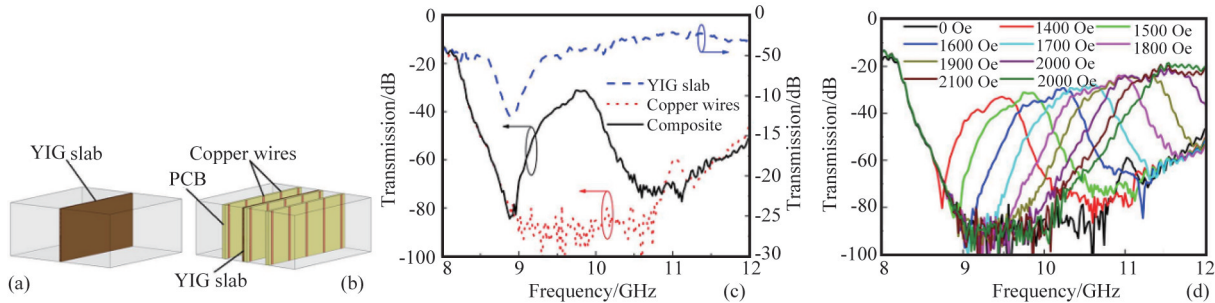
率, 但是由于各向异性的结构特征导致其只表现出一维负磁导率, 且共振频率需要通过调节 SRRs 尺寸参数从而改变电感和电容进行调谐。铁磁介质由于其良好的可调谐性被用于取代 SRRs 结构以实现负磁导率。铁磁介质的负磁导率出现在其铁磁共振频率附近, 而铁磁共振频率可以通过偏置磁场、磁晶各向异性场、退磁场等进行调谐。因此可以通过调谐这些因素进行超材料特性的调谐。下面对这些可调谐因素进行介绍。

2.2.1 场致可调谐特性

由于调节铁磁介质的静磁场可以改变铁磁共振的频率进而改变负磁导率出现的位置, 所以这是一种非常有效的左手特性调节方式。清华大学周济课题组对铁氧体-金属线复合左手材料做了一系列工作, 他们利用刻蚀印刷电路板方法在 PCB 刻蚀出等间隔的金属铜线阵列并在另一侧加入 YIG 铁氧体板^[11]。实验发现这种复合结构在外加磁场的情况下在禁带范围内出现透射通带。通过 CST 模拟的结果发现透射通带会出现在磁导率和介电常数同时为负的区域。图 2^[11]给

出了复合结构在不同磁场下的通带频率位置,可以看到,外加磁场为0时,并不会出现透射通带,而随着磁场强度的增加,左手材料的通带以及YIG板的负磁导率可以动态、连续

地进行调谐。同时也注意到,外加磁场强度和铁磁共振发生的频率、负磁导率出现位置以及左手通带的位置,均近似成线性关系。



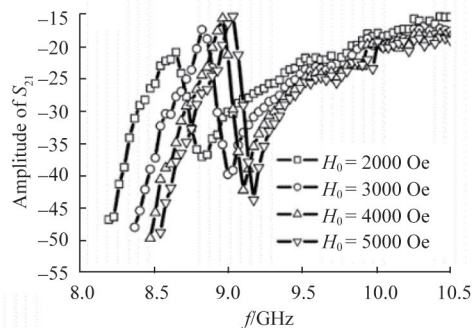
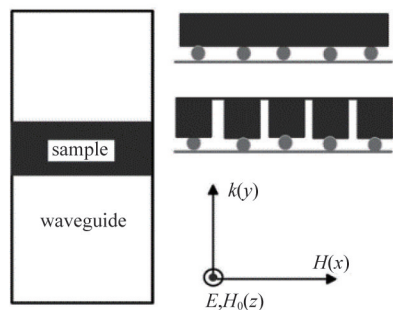
(a) YIG铁氧体板;(b) YIG铁氧体-PCB为复合左手材料;(c) 外加磁场 $H_0=1500$ Oe时YIG板、铜线、及复合左手材料的透射频谱;(d) 不同静磁场条件下复合左手材料的透射频谱

图2 YIG铁氧体-印刷铜线复合结构左手材料结构及其微波特性

Fig. 2 Structure and properties of YIG ferrite-Cu wires composite LHM

北京科技大学的白洋等^[12]对磁场调谐左手材料结构进行了深入研究,构造了Y型钡铁氧体($Ba_2Co_{1.8}Cu_{0.2}Fe_{12}O_{22}$)和等间隔的一列的铜线的复合结构。单一的铁氧体板在外加磁场强度高于3000 Oe后,透射频谱会出现一个明显透射谷,对应铁磁共振,并随着场强增加向高频移动。对于铁氧体板和铜

线的复合结构,当铁氧体块和铜线单元间距比较小的时候,只会出现一个非常小的左手通带。如果在单元之间加入缓冲层(如2 mm的树脂玻璃)降低电磁耦合的干扰,这样就可以观察到显著左手通带(图3^[21]),并且左手通带可以通过偏置磁场进行调谐。



(a) Y型钡铁氧体-金属线复合左手材料的结构示意图

(b) 在不同磁场下的透射频谱

图3 Y型钡铁氧体-金属线复合左手材料的结构与微波性能

Fig. 3 Structure and properties of Y-type hexaferrite-Cu wire composite LHM

南京大学的伍瑞新等^[13]在FR4基质中嵌入了周期排列的MnZn铁氧体棒和铜线阵列构造左手复合结构,如图4^[13](b)所示。为了降低电磁耦合作用,复合结构采用了铁氧体棒阵列而非铁氧体板,并且将铜线处于相邻铁氧体棒中央。图4(c)展示了随着偏置场变化的异常透射结果。由于MnZn铁氧体具有很低的磁晶各向异性,当偏置场增加到600 Oe时,透射频谱中就出现异常通带——即左手通带,并且随着场强增加,通带出现位置向高频移动。

此外,清华大学周济等^[14]研究了铁氧体-金属复合左手材料的左手通带频率与静磁场强度的定量关系,发现它们具有

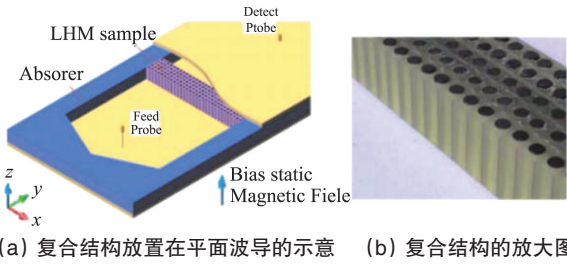
很好的线性关系,左手频带位置随外磁场强度增加而线性增加,如图5^[14]所示。

2.2.2 形状诱导可调谐特性

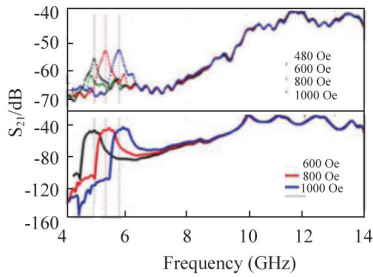
白洋等^[15]用一系列铁氧体棒实现了负磁导率,并且讨论了其影响因素。考虑样品的形状退磁效应,铁磁共振的频率 ω 可以通过Kittle方程表示^[15]

$$\omega_r = \left\{ \left[\omega_0 + (N_x - N_z)\omega_m \right] \left[\omega_0 + (N_y - N_z)\omega_m \right] \right\}^{1/2} \quad (2)$$

其中, $\omega_0 = \gamma H_0$, $\omega_m = \gamma M_s$, H_0 为恒磁场强度, M_s 为饱和磁化强度, N_x 、 N_y 、 N_z 为不同方向的退磁化因子。

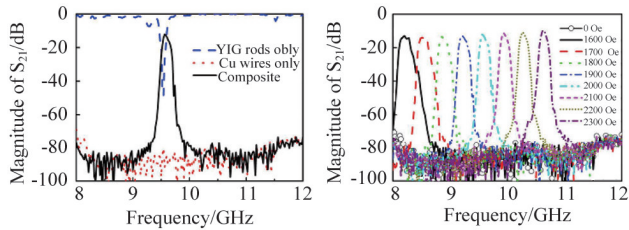


(a) 复合结构放置在平面波导的示意 (b) 复合结构的放大图

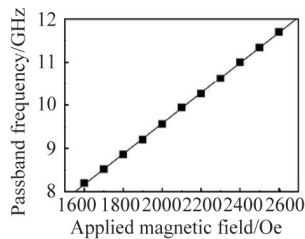


(c) 不同偏置场下的透射结果

图4 MnZn铁氧体-金属线复合左手材料的结构与微波性能
Fig. 4 Structure and properties of MnZn ferrite-Cu wire composite LHM



(a) YIG铁氧体、金属Cu线及其复合结构的透射频谱 (b) 不同磁场下复合结构的透射频谱变化

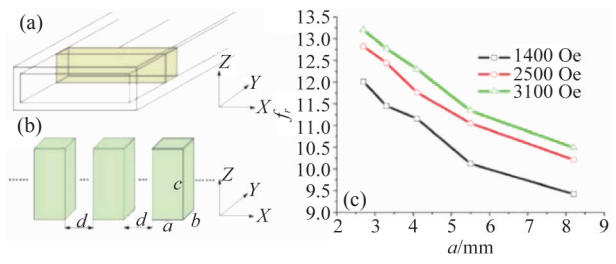


(c) 左手通带频率随外加磁场强度的变化趋势

图5 YIG铁氧体-金属线复合左手材料的微波性能

Fig. 5 Properties of MnZn ferrite - Cu wires composite LHM

由于磁化铁氧体的形状退磁效应,棒的尺寸会影响铁磁共振的特性。图6^[5](c)表明了棒的尺寸 a 和共振频率的关系,测试样品是不同 a 的单一铁氧体棒,随着 a 增大,共振频率单调递减。随着 a 减小, $(N_x - N_z)$ 显著增加, $(N_y - N_z)$ 略微下降,根据 Kittel 方程,总体上共振频率会增加。计算的铁磁共振频率(表1)和实验数据有相同趋势。同时还指出,多种规格的铁氧体棒的结合会产生多通带现象。白洋等^[15]展示2个 $3.3 \times 4 \times 10 \text{ mm}^3$ 和1个 $5.5 \times 4 \times 10 \text{ mm}^3$ 铁氧体棒单元的透射频谱结果,透射频谱出现2个通带,且均具有场致可调特性。



(a) 样品放置在波导中的实验示意;(b) 铁氧体棒阵列结构的示意;(c) 共振频率和铁氧体棒的宽度 a 的关系

图6 铁氧体棒阵列的共振频率

Fig. 6 Resonant frequency of the array of ferrite rods

表1 不同宽度 a 的单一棒的退磁因子 N

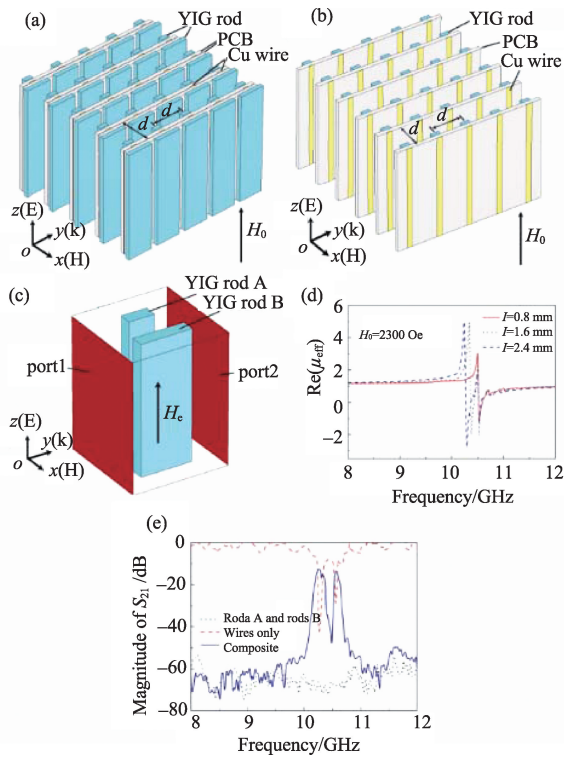
Table 1 Demagnetization factor N of a single rod for different widths

a/mm	N_x	N_y	N_z	$(N_x - N_z)$	$(N_y - N_z)$
8.2	0.26	0.53	0.21	0.05	0.31
5.5	0.35	0.47	0.18	0.17	0.29
4.1	0.41	0.42	0.17	0.24	0.25
3.3	0.46	0.39	0.15	0.31	0.24
2.8	0.51	0.36	0.14	0.37	0.22

周济等^[16]进一步研究了双通带铁磁介质的左手材料。他们构造了2种规格不同的YIG棒和铜线的复合结构,如图7^[17](a)和(b)所示。由于2种形状不同YIG棒单元的存在,使得复合结构在2个区域内都存在负磁导率,进而实现了有2个透射通带的左手复合材料。图7(c)图示每单元含有形状尺寸不同的2个铁氧体棒,在相同外加磁场下的铁磁共振频率不同,如图7(d)所示。当 $l=0.8 \text{ mm}$ 时,由于2个铁氧体棒的退磁因子相同,只出现了1个负磁导率;当 $l > 0.8 \text{ mm}$ 后,在8~12 GHz 范围内出现了2个明显的负磁导率频带,双负磁导率频带可以通过铁氧体的尺寸调谐。此后,毕科等^[17]又在此基础上研究开发了频率可调的多频带微波滤波器。

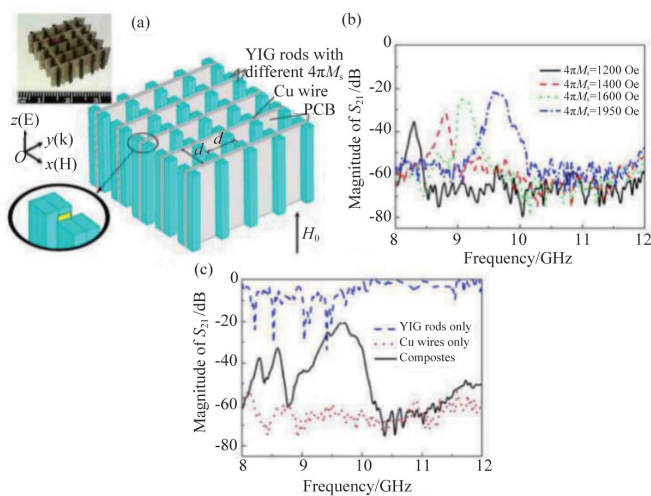
2.2.3 M_s 诱导可调谐特性

周济等^[18]指出,不同饱和磁化强度 M_s 的铁氧体棒组合也可以实现多通带左手特性的调谐。多通带负折射率铁氧体超材料由4个铁氧体棒和1个金属线的单元构成,如图8^[17](a)所示。4个铁氧体棒的饱和磁化强度分别为1200、1400、1600和1950 Gs。在外加磁场下(2300 Oe)测得4种铁氧体棒分别的透射频谱,与铁磁共振对应的带隙依次排列,如图8(b)所示。对含4种铁氧体和金属线的复合左手材料,透射频谱存在1个较宽的通带和2个较窄的3个通带,其中较宽通带是由于1600和1950 Gs饱和磁化强度的铁氧体棒相连所致,如图8(c)所示。由此可见调整铁氧体的饱和磁化强度可以容易实现单通带、双通带乃至多通带的可调左手材料。毕科等^[19,20]又根据以上结构进一步研究设计了频率可调的双带微波滤波器。



(a) 双通带铁氧体-金属线复合超材料结构示意图; (b) 单通带铁氧体基超材料结构示意图; (c) 双铁氧体棒单元结构示意图; (d) 外加 2300 Oe 磁场下不同宽度铁氧体棒的磁导率实部值; (e) 双铁氧体棒复合超材料的透射频谱

图 7 双通带铁氧体-金属线复合超材料的结构与性能
Fig. 7 Structure and properties of dual-band ferrite-Cu wire metamaterial



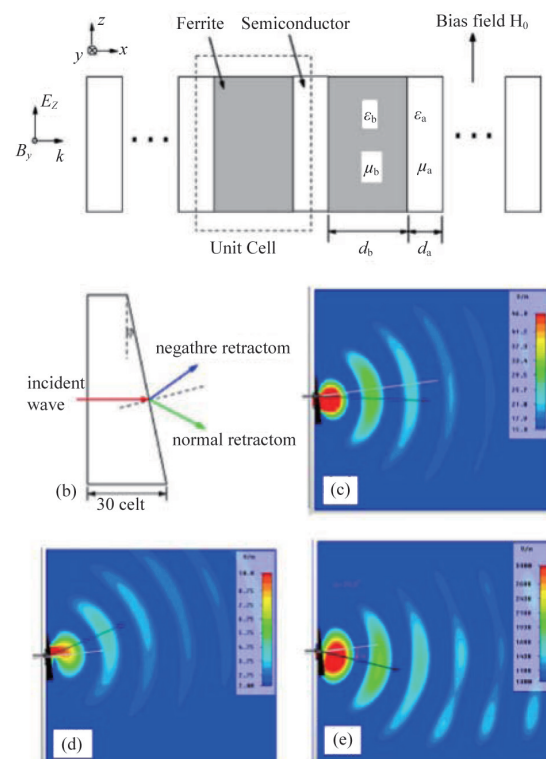
(a) 多通带铁氧体-金属线复合超材料示意图; (b) 外加 2300 Oe 下, 含单一铁氧体棒(4πM_f值不同)的超材料的透射频谱; (c) 外加 2300 Oe 下, 含有 4 种不同 4πM_f 值铁氧体棒组成的多通带超材料的透射频谱

图 8 多通带铁氧体-金属线复合超材料的结构与性能
Fig. 8 Structure and properties of multi-band ferrite-Cu wire metamaterial

2.3 铁磁基质左手材料的新奇特性

2.3.1 负折射率

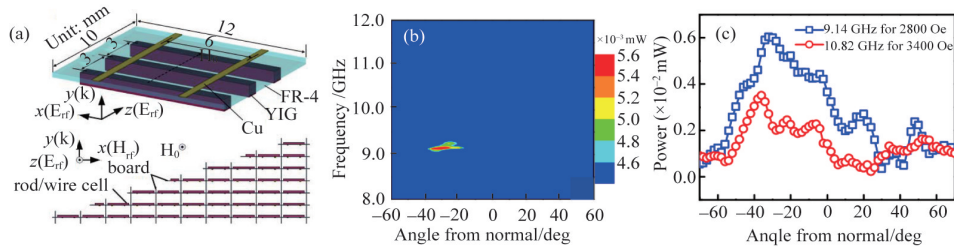
伍瑞新等^[21]构造一维周期性排列的 YIG 铁氧体层和半导体硅(Si)层复合结构,如图 9^[21](a)所示。为了展示复合结构的左手特性,将其制成如图 9(b)所示的 30 个单元构成的楔形棱镜样品,采用有限元方法模拟棱镜实验,如图 9(c)~(e)所示。外加磁场 600 Oe 时,有效折射率大约为 5.1,电场分布表明入射和折射波在界面法线的两侧,也就是说,波发生了正折射。而当磁场增加到 1050 Oe 时,电场分布表明波发生了负折射,模拟的结果和计算结果基本一致。用 $\epsilon=1$ 和 $\mu=10.2$ 的印刷电路板对上述结果进行验证,如图 9(e)所示,表现出了正折射率,折射角为 19.8°,这和理论值 19.7°基本一致。



(a) YIG 铁氧体和 Si 单元组成超材料的结构示意图; (b) 30 个超材料单元构成的楔形棱镜及其在不同磁场下的透射功率图; (c) 600 Oe 下的正折射; (d) 1050 Oe 下的负折射率; (e) 用印刷电路板的实验验证结果

图 9 YIG 铁氧体-Si 复合超材料的结构与性能
Fig. 9 Structure and properties of ferrite-Si LHM

周济课题组^[22]设计并制作了铁氧体棒和金属线单元的超材料结构,通过微波实验观察了超材料的负折射现象。将复合左手材料制成楔形样品进行棱镜实验,对于铁氧体棒与金属线垂直排列的复合左手材料,从透射能量和频率角度的关系中可以看到,在外加磁场强度为 2800 Oe 下,入射电磁波经过左手材料楔形样品后被折射到负角度范围内,从而实验证明铁氧体-金属线复合左手材料具有显著地负折射特性(图 10^[22])。



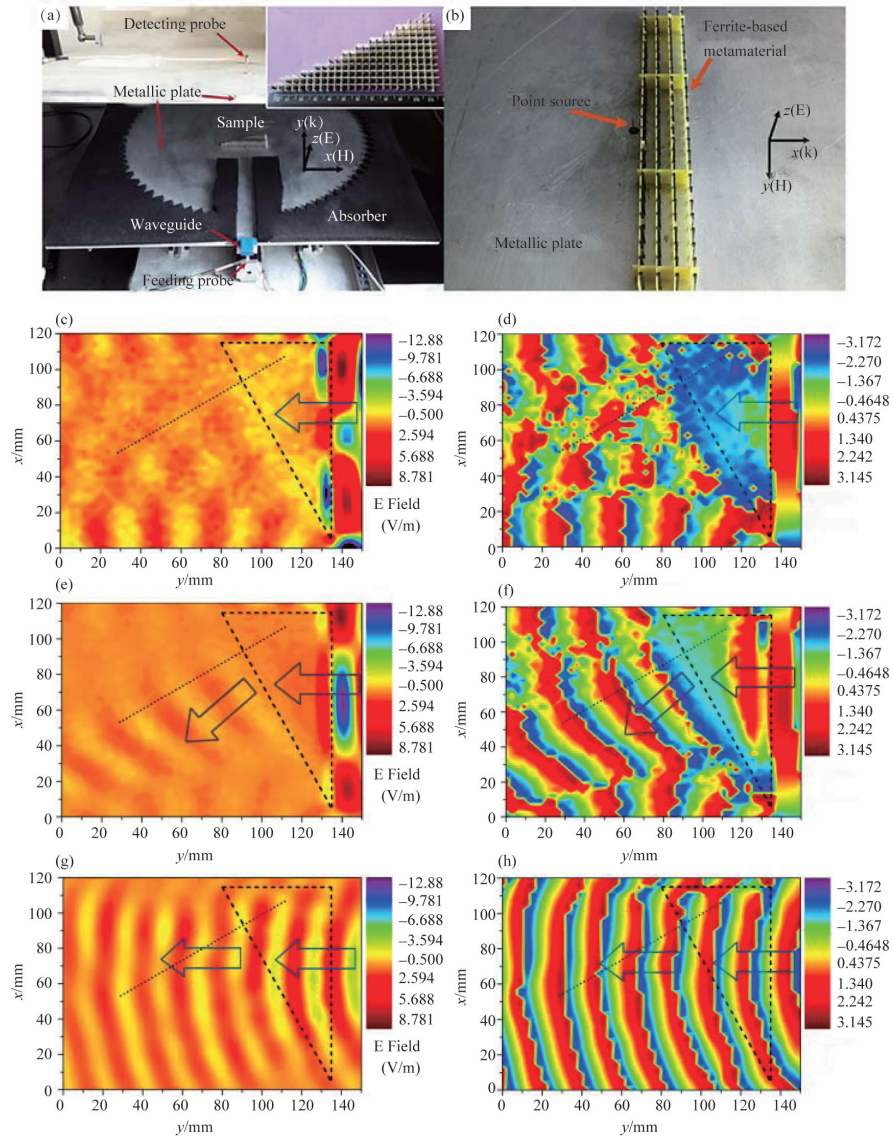
(a) 铁氧体棒和金属线超材料结构示意图; (b)、(c) 对应的棱镜实验结果

图 10 YIG 铁氧体-Cu 线复合超材料的结构与性能

Fig. 10 Structure and properties of ferrite-Cu wire LHM

周济等^[23]还设计制造了永磁铁氧体棒和金属线周期性排列的超材料结构。由于采用永磁铁磁体棒代替了传统的铁磁体棒, 仅利用内部强磁晶各向异性场就能激励铁磁共振产

生负磁导率, 因而复合左手材料在不外加磁场的情况下就具有负折射特性。使用平面波导系统(图 11^[23](a)), 测试不同频率的入射波入射到楔形样品后出射波强度及相位分布。入



(a) 近场扫描系统; (b) YIG 铁氧体-Cu 线复合超材料的实验装置照片; (c) 9.85 GHz 入射波时电场强度; (d) 9.85GHz 入射波时相位分布; (e) 10.85 GHz 入射波时电场强度; (f) 9.85 GHz 入射波时相位分布; (g) 15.8 GHz 入射波时电场强度; (h) 15.8 GHz 入射波时相位分布

图 11 YIG 铁氧体-Cu 线复合超材料的折射实验

Fig. 11 Refraction experiment of YIG ferrite-Cu wire LHM

射波从右方垂直入射到楔形样品的长直角边,其中箭头表示传播方向。在9.85 GHz时,样品的左边没有出射波的出现,如图11(c)、(d)所示。虽然永磁铁氧体在此频率下的磁导率为负数,但在铁磁共振频率附近有很大的损耗,因此样品只显示出强烈的吸收特性。在10.85 GHz时,入射波经过楔形样品发生了明显的负折射现象,如图11(e)和(f)所示。在15.8 GHz时,由于远离铁磁共振频率,铁氧体和电磁场的耦合作用比较微弱,样品的折射率近似为1,发生了正折射的现象,如图11(g)、(h)所示。特别是,在12.2 GHz频率,磁导率恰好近似等于0,入射波发生了近零折射现象,如图12^[23]所示。

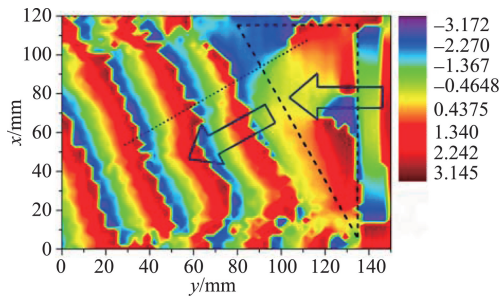
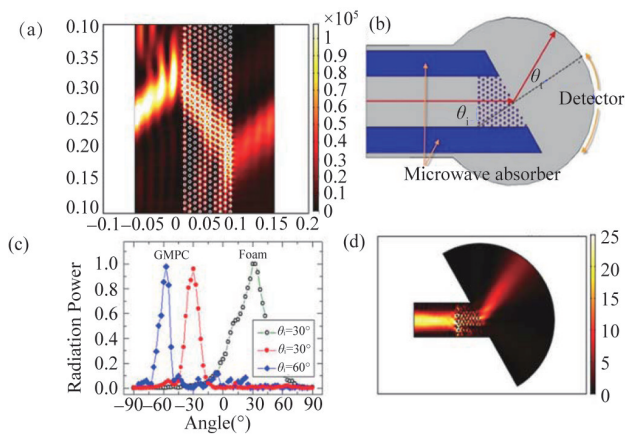


图12 12.2 GHz楔形样品发生的近零折射现象

Fig. 12 Measured spatial maps of the phase of electric field for an incident wave at 12.2 GHz (near-zero refractive index) refracting from a wedge

用光子晶体制作左手复合材料可以减少损耗,拓宽通带。伍瑞新等^[24]设计了自偏置的铁氧体棒(含Sr掺杂的永磁钡铁氧体)和金属铜线阵列组成的左手材料。他们模拟了波束位移实验验证负折射现象,如图13^[24](a)所示。11.1 GHz高斯波束斜入射穿过复合左手材料平板,在试样平板左右两边

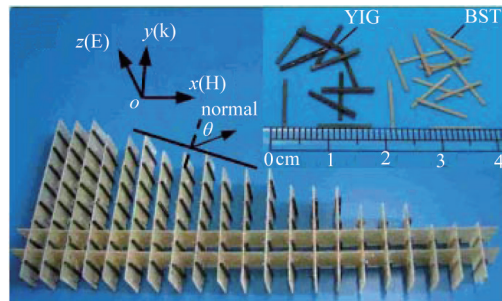


(a) 11.1 GHz的电磁波穿过钡铁氧体-Cu线复合超材料发生波束位移的能流分布;(b) 棱镜实验的示意图;(c) 11.1 GHz下,超材料与对照泡沫棱镜的归一化透射峰角度;(d) 11.1 GHz下,模拟的棱镜实验能流分布

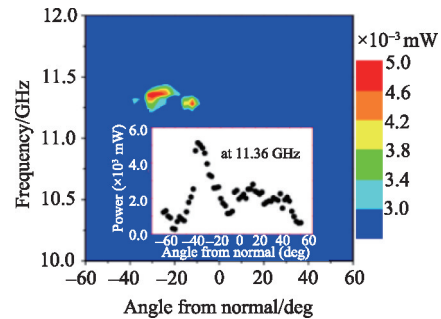
图13 钡铁氧体-Cu线复合超材料的波束位移和棱镜实验结果
Fig. 13 Beam shift and prism experiments for Ba hexaferrite-Cu wire composite LHM

表面先后发生负折射,产生明显的波束位移。他们进一步进行楔形左手材料(60°和30°)的折射和透射实验,如图13(b)所示。入射波经过样品发生明显的负折射现象,且折射角随样品顶角角度不同发生相应变化,如图13(c)所示。全波模拟也验证了实验结果。

周济等^[10]设计制造的YIG棒和BST棒的楔形阵列结构(如图14^[10](a)所示)也具有明显的负折射特性。在2500 Oe的磁场强度下,频率10~12 GHz的频率范围内,出射波功率最大值出现在-30°,11.36 GHz的位置,如图14(b)所示。根据广义的折射定律,这种超材料的折射率大概为-1.58,也就是说实现了负的磁导率。



(a) YIG棒和BST棒复合超材料棱镜的实物照片



(b) 棱镜实验出射波角度分布结果

图14 YIG棒-BST棒复合超材料的结构与负折射棱镜实验

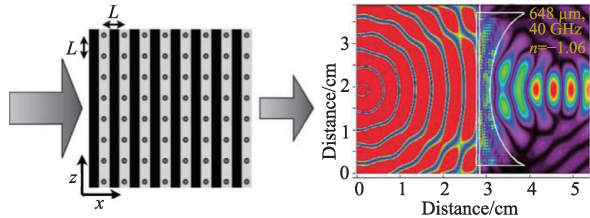
Fig. 14 Prism experiments for YIG ferrite rod-BST ferroelectric rod composite LHM

2.3.2 可调聚焦与移相器

Rachford等^[25]设计了永磁钡铁氧体与方形金属网的复合结构,其中铁氧体层提供负磁导率,金属网格提供负介电常数。将复合结构制成凹柱镜片(图15^[25](b)),在镜片的前表面距离2.6 cm处放置一个线源,在外加磁场的条件下,由于凹柱镜片的折射率为负,使得射线发生会聚。调节外加磁场从925 Oe变到1075 Oe,对应的焦距会线性的从1.21 cm变到0.84 cm,实现了焦距的调谐。

Harris等^[26]设计了可调谐负折射率超材料(TNIM)和微型移相器。左手复合结构由YIG板和刻在聚酰亚胺上的铜线阵列组成,单元之间有一层聚脂薄膜间隔。这种复合结构可以在一个较宽的频率范围内实现左手通带的场致可调性。

模拟得到 TNIM 在 3.0、3.5、4.0 kOe 场强下微波的透射频谱, 可以看到随着磁场强度的变化会出现频率相位偏移现象, 而且这种相位偏移与磁场强度具有很好的线性关系。



(a) 铁氧体(黑色)介电常数(灰色)和方形铁网(黑色圆圈)组成的复合结构示意图 (b) 块状复合结构制成凹柱透镜折射结果

图 15 钡铁氧体-金属线复合超材料的结构和聚焦实验
Fig. 15 Structure and focusing experiments for Ba hexaferrite-metallic wire composite LHM

3 非结构的复相及单相左手材料研究

3.1 非结构的复相及单相左手材料

一般认为在自然界中并不存在负折射率的材料, 因此有研究者希望通过将负磁导率介质与负介电材料复合获得双负左手特性。2006年, 白洋等^[27]制备了铌镍酸铅-六角铁氧体复合共烧陶瓷, 在材料内铁电相与铁磁相以颗粒形式均匀复合, 希望将铁电相的负磁导率和铁磁相的负介电常数结合获得双负特性, 结果显示复合材料具有显著的负介电常数特性, 但是铁氧体的负磁导率特性却消失、未出现在复合材料中。

2010年, Ciomaga 等^[28]制备了类似的铌锌酸铅-钴铁氧体复合共烧陶瓷, 复合材料在不同频段分别显示负介电常数和负磁导率(图 16^[28]), 但是二者也未能在同一频段同时出现, 即不具有双负特性。

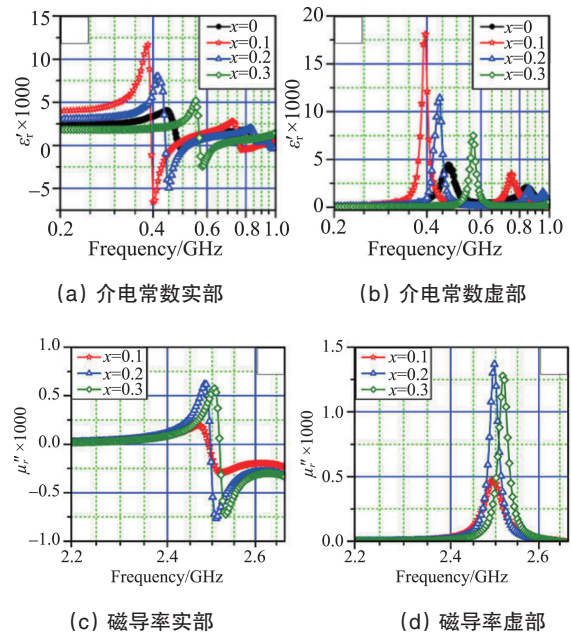


图 16 铌锌酸铅-钴铁氧体复合共烧陶瓷电磁频谱特性
Fig. 16 Frequency dependence of permittivity and permeability for xCF-(1-x)PZTN composites

2009年, 白洋等^[29]采用离子取代将具有负磁导率特性的 Co₂Z 铁氧体半导化, 希望通过等离子共振产生负介电常数, 同时保持铁氧体的负磁导率。但是实验结果显示, 改性铁氧体确实具有负介电常数(图 17^[29]), 但是其负磁导率特性随之消失, 即材料只具有负介电常数的单负特性。将其与 YIG 铁氧体片组合成复合结构, 微波透射结果显示明显的可调左手通带, 此时 Co₂Z 铁氧体提供负介电常数, YIG 铁氧体提供负磁导率。

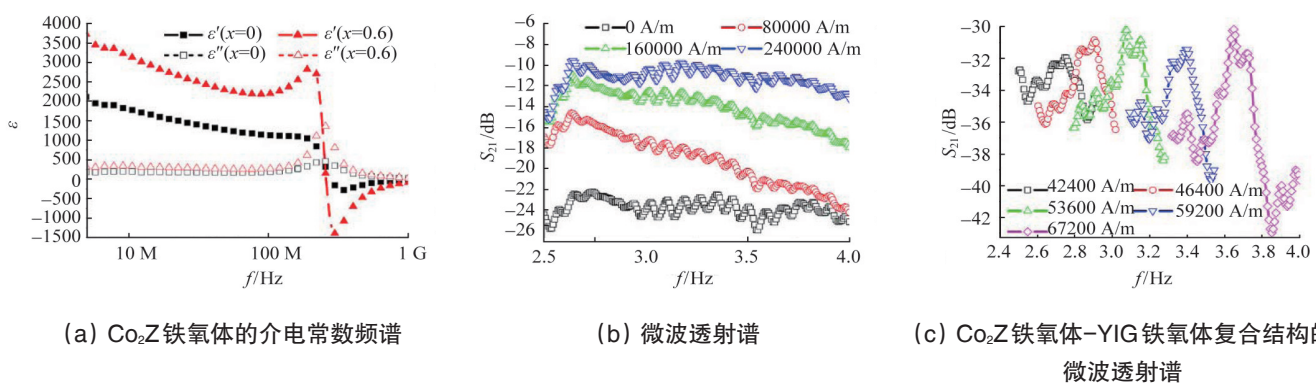


图 17 Co₂Z 铁氧体及其与 YIG 铁氧体复合结构的电磁特性
Fig. 17 Electromagnetic properties of Co₂Z-YIG ferrite composite materials

由于很难在单相或颗粒均匀的复合材料中获得双负特性, 有研究者提出并不一定需要 ϵ 或 μ 同时为负数, 仅需满足以下条件也可以实现负折射率^[30,31]:

$$(\epsilon_1 + |\epsilon^*|)(\mu_1 + |\mu^*|) < \epsilon_2 \mu_2 \quad (3)$$

这里复合磁导率 μ^* 的实部 $\mu_1 < 0$, 而且具有很高的介电损耗 $|\epsilon^*| \approx \epsilon_2$ 。2007年, Pimenov 等^[32]根据该理论, 在铁磁性 La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃(LCMO) 中获得了负折射率特性。150 GHz 的频率下, 不同温度的折射率和吸收系数和磁场的关系如图 18 所

示。随着温度上升,共振位置向高强度移动。从图 18^[32]中可以很明显的看到在很大的区域内,尤其是在铁磁性时 LCMO 的折射率都为负。

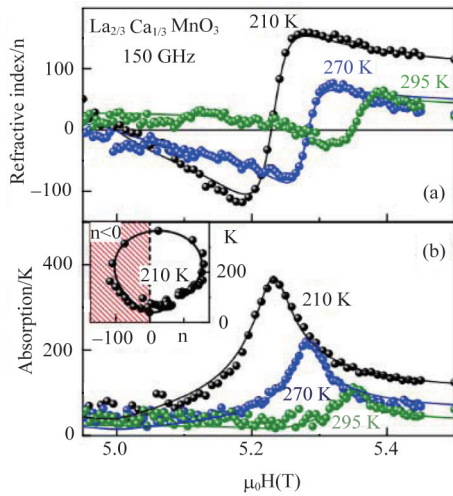


图 18 在 150 GHz 时 LCMO 在不同温度下的折射率(a)和吸收系数(b)的磁场依赖性

Fig. 18 Magnetic field dependence of the refractive index (a) and absorption coefficient (b) of LCMO at $\nu=150$ GHz and different temperatures.

范润华等^[33]研究了不同 Sr 掺杂比的 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) 钙钛矿结构铁磁体块材的负磁导率特性。他们测试了材料的复磁导率和介电常数,如图 19^[33]所示。当 $x=0.2$ 时,在 200MHz 以下材料出现负磁导率;在 200 MHz 到 1 GHz 频段内的磁导率小于 1。实部和频率的关系是典型的共振性磁导率频谱,能观测到磁损耗峰值,并且负磁化系数分别出现在 0.2 和 0.6 GHz。但该材料仅是磁化系数小于 1 而非磁导率小于 1,并不算真正的负磁介质,而且其频段与负介电常数频段并未重合。

除了直接构造双负参数以获得左手特性之外,周济等^[34]还利用材料参数的强各向异性构造双曲线型超材料,利用 M

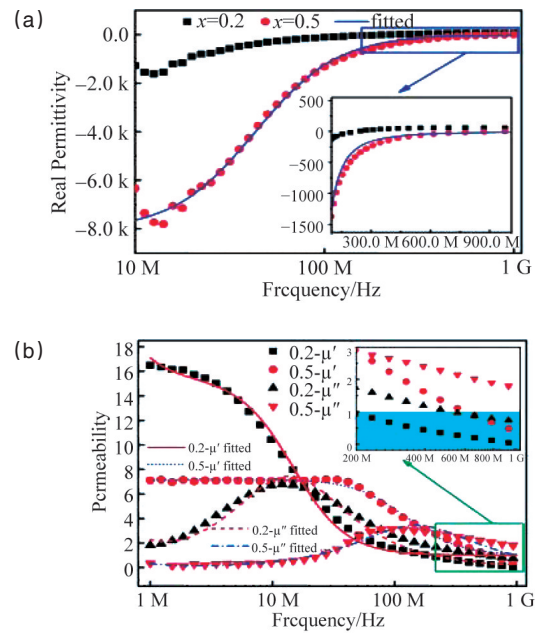


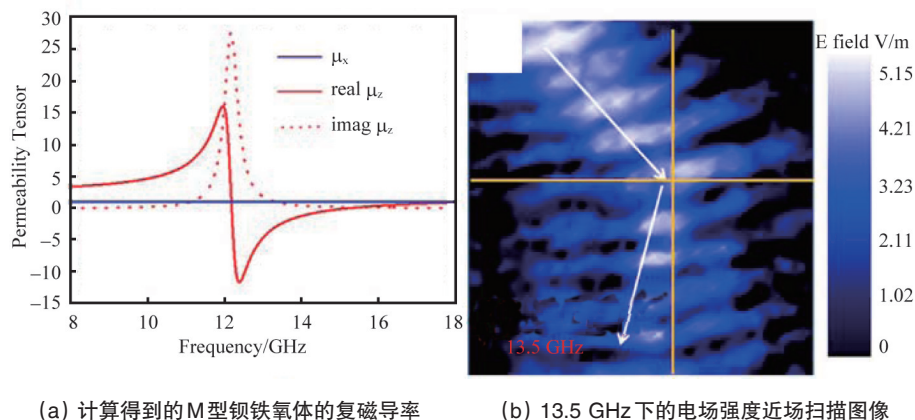
图 19 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 的复介电常数 (a) 和复磁导率 (b) 与频率的关系

Fig. 19 Frequency dependence of (a) complex permittivity and (b) permeability spectra for $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$

型钡铁氧体在铁磁共振附近磁导率 x, y 方向分量的强烈色散及其与 z 方向分量符号相反的强各向异性,在一定频率范围内实现了全角度的负折射特性(图 20)。

3.2 左手材料复合结构中的电磁相互作用

左手材料的奇特电磁特性均取决于负介电常数和负磁导率,目前左手材料均是两相复合结构,其中负介电常数和负磁导率由两相分别实现。已有大量报道,可以用多种方法分别实现负介电常数和负磁导率,依据有效介质理论很容易在复合结构中实现双负特性。但是值得注意的是负电磁参数的两相组元间存在电磁耦合,可能显著地影响复合材料特性。基于谐振环和金属线单元的左手材料,由于具有规则的二维周期结构,松散的结构和特定的各向异性关系可以极大



(a) 计算得到的 M 型钡铁氧体的复磁导率

(b) 13.5 GHz 下的电场强度近场扫描图像

图 20 自偏置 M 型钡铁氧体的电磁特性及负折射实验

Fig. 20 Electromagnetic properties and negative refraction experiment of self-biased Ba hexaferrite

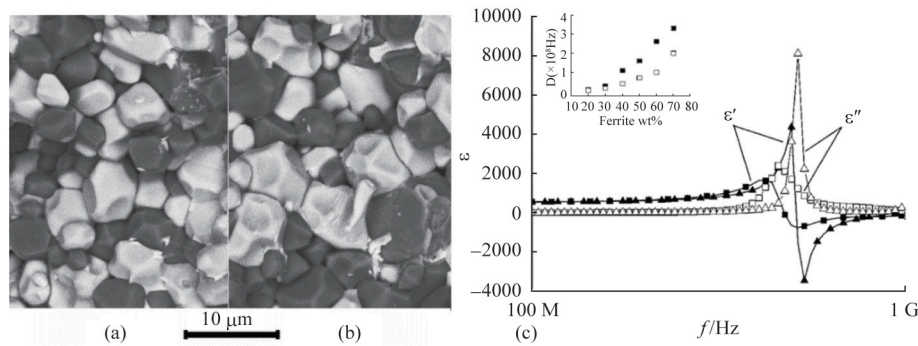
减弱电磁相互作用对最终性能的影响^[35-37]。但是对于基于铁磁介质的左手材料,由于两相组元混乱无规则排列且具有三维各向同性特性,因此其电磁相互作用不容忽视,此前的研究结果也显示各种非结构的复相或单相材料均未能实现双负特性。有研究者也对此进行了大量研究。

白洋等^[27]研究铌镍酸铅-六角铁氧体复合共烧陶瓷(图 21)。从背散射电子图像中可以看到,铁电相和铁磁相颗粒分布均匀。随铁磁相含量增加或其磁导率增强,复合材料的介电共振峰减弱并向高频方向移动,负介电常数数值显著减小,说明两相之间电磁耦合显著减弱了介电共振特性。

此后,他们对此进行了进一步深入的理论研究。采用有限元的方法模拟了周期性金属线排列直接嵌入铁磁体基体电磁特性^[38],如图 22^[38](a)所示。对于具有各向异性负磁导率的介质基体和金属线的复合结构,其透射频谱具有 2 个通带(图 22(b)),其中 15.5 GHz 通带具有左手特性(铜线提供负介电常数、介质提供负磁导率),入射波在试样中反向传播(图 22(c));而在 18.5 GHz 频率左右的通带并不是左手的。该研究表明,沿外加磁场方向的负磁导率是获得左手特性的充分条件。进一步研究不同各向异性负磁导率的情况,沿外加磁

场方向的负磁导率是获得左手特性的必要条件,另外两方向的负磁导率与电磁波磁场分量不耦合、对左手特性没有贡献(图 23^[38])。另一方面,介质基体的负磁导率会破坏金属线阵列的等离子共振,进而阻碍复合材料实现双负特性。该阻碍行为也具有各向异性,垂直电场方向的负磁导率会破坏金属线等离子共振,而平行方向的负磁导率无影响。他们还进一步研究了削弱电磁耦合负面作用的方法,在负磁介质基体和金属线之间加入了一个非磁性缓冲层可以有效提升复合结构的左手特性。

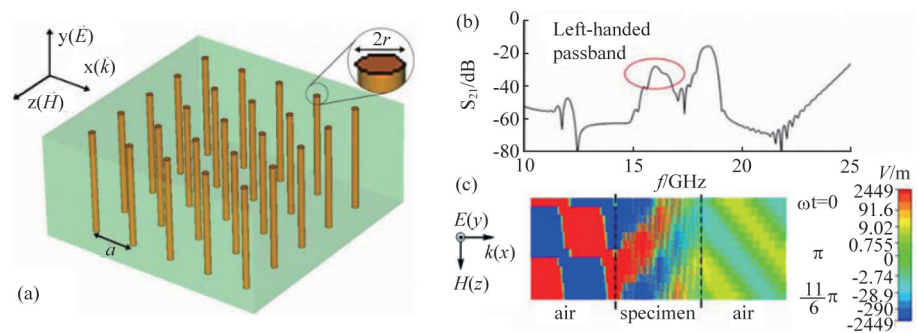
周济课题组设计了两种铁氧体棒和金属线复合左手材料结构(如图 24^[22](a)和(b)所示),通过实验观察了左手材料的异常折射现象^[22]。将这两种排列不同的左手材料制成楔形样品进行棱镜实验,可以看到,铁氧体棒与金属线平行排列的超材料结构由于相邻的铁氧体棒和金属线在共振频率范围内电磁耦合作用,在负折射率出现的相邻频段又出现正折射率,如图 24(c)所示。而对于垂直排列的棒-线结构,在外加磁场强度为 2800 Oe 下,透射波束仅能被折射到负角度范围内而没有观察到正折射波束,这是因为垂直的棒线取向关系削弱了电磁耦合作用。



(a) $x=0$ 和 (b) $x=1.2$ 的铌镍酸铅-Y 型铁氧体复合共烧陶瓷的背散射电子图像; (b) 不同铁氧体含量的复合陶瓷的介电频谱

图 21 铌镍酸铅-六角铁氧体复合共烧陶瓷的显微结构与电磁特性

Fig. 21 Microstructure and electromagnetic properties of PNNT ferroelectric ceramics-Y type hexaferrite cofired composite ceramics



(a) 金属线和铁磁介质复合结构的示意; (b) 各向异性负磁介质的透射频谱; (c) 通带中心频率的一个周期的电场分布

图 22 铁磁介质-金属线复合左手材料的结构与性能

Fig. 22 Structure and properties of a composite with metallic wires embedded in a homogeneous negative- μ medium

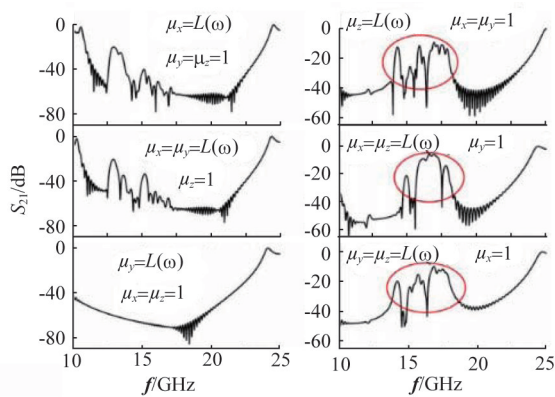
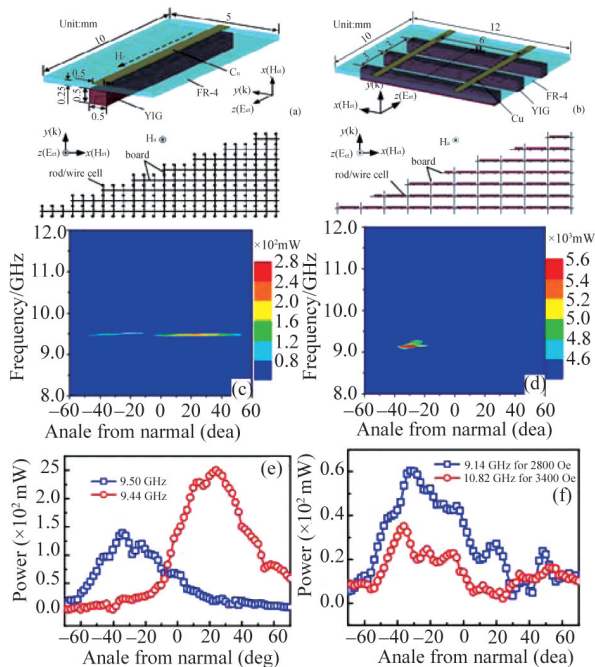


图 23 不同磁各向异性特征时的复合结构的透射频谱
Fig. 23 Transmission spectra of the specimen with metallic wires embedded in a homogeneous negative- μ medium with different kinds of anisotropy



(a) 平行排列结构; (b) 交叉排列结构; (c) 平行排列的棱镜实验结果;
(d) 交叉排列的棱镜实验结果; (e) 平行排列的入射波角度分布结果;
(f) 交叉排列的入射波角度分布结果

图 24 YIG 铁氧体-Cu 线复合左手材料的结构与性能
Fig. 24 Structure and properties of YIG ferrite-Cu wire LHM

4 结论

左手材料作为最典型的一类超材料,具有众多奇特的电磁特性。将铁磁介质等传统功能材料引入左手材料设计,使其超越了超材料完全依赖各种金属形状设计、与组成材料无关的特性,有助于克服普通超材料的金属高损耗、纳米加工困难、可调谐性差等缺点,而且可以引入功能材料的多功能

性进一步拓充左手材料的奇异特性,对于左手材料及器件的发展具有重要的意义。此外,含功能介质左手材料的出现也从本质上证明了其有效连续介质的物理本质,对于左手材料的理论发展具有重要的推动意义。将功能材料的经典物理理论与超材料的新颖设计理念相结合,对新型功能材料与器件的发展提供了一条全新的光明的方向。

参考文献(References)

- [1] Veselago V G. The electro dynamics of substance simultaneously negative values of ϵ and μ [J]. Soviet Physics Uspekhi, 1968, 10(4): 509-514.
- [2] Pendry J B. Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures [J]. Physical Review Letters, 1996, 76(25): 4773-4776.
- [3] Pendry J B. Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena [J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 1999, 47(11): 2075-2084.
- [4] Shelby R A, Smith D R, Schultz S. Experimental verification of a negative index of refraction [J]. Science, 2001, 292(5514): 77-79.
- [5] Tsutaoka T, Nakamura T, Hatakeyama K. Magnetic field effect on the complex permeability spectra in a Ni-Zn ferrite [J]. Journal of Applied Physics, 1997, 82(6): 3068-3071.
- [6] Tsutaoka T, Kasagi T, Hatakeyama K. Magnetic field effect on the complex permeability for a Mn-Zn ferrite and its composite materials [J]. Journal of the European Ceramic Society, 1999, 19(6): 1531-1535.
- [7] Pimenov A, Loidl A, Przyluski P, et al. Negative refraction in ferromagnet-superconductor superlattices[J]. Physical Review Letters, 2005, 95(24): 247009.
- [8] He Y X, He P, Harris V G, et al. Role of ferrites in negative index metamaterials[J]. IEEE Transactions on Magnetics, 2006, 42(10): 2852-2854.
- [9] He Y, He P, Dae Yoon S, et al. Tunable negative index Metamaterial using yttrium iron garnet [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2007, 313(1): 187-191.
- [10] Zhao H, Kang L, Zhou J, et al. Experimental demonstration of tunable negative phase velocity and negative refraction in a ferromagnetic/ferroelectric composite Metamaterial[J]. Applied Physics Letters, 2008, 93(20):201106.
- [11] Zhao H, Zhou J, Zhao Q, et al. Magnetotunable left-handed material consisting of yttrium iron garnet slab and metallic wires[J]. Applied Physics Letters, 2007, 91(13):131107.
- [12] Xu F, Bai Y, Qiao L, et al. Microwave left-handed composite material made of slim ferrite rods and metallic wires[J]. Chinese Physics B, 2009, 18(4): 1653.
- [13] Poo Y, Wu R, He G, et al. Experimental verification of a tunable left-handed material by bias magnetic fields[J]. Applied Physics Letters, 2010, 96(16): 161902.
- [14] Zhao H, Zhou J, Kang L, et al. Tunable two-dimensional left-handed material consisting of ferrite rods and metallic wires[J]. Optics Express, 2009, 17(16): 13373-13380.
- [15] Xu F, Bai Y, Ai F, et al. Realization and modulation of negative permeability using an array of hexaferrite rods[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2009, 42(6): 065416.
- [16] Bi K, Zhou J, Zhao H, et al. Tunable dual-band negative refractive index in ferrite-based metamaterials[J]. Optics Express, 2013, 21(9): 10746-10752.

- [17] Wang Q, Zeng L, Lei M, et al. Tunable metamaterial band stop filter based on ferromagnetic resonance[J]. *AIP Advances*, 2015, 5(7): 077145.
- [18] Bi K, Zhou J, Liu X, et al. Multi-band negative refractive index in ferrite-based metamaterials[J]. *Progress In Electromagnetics Research*, 2013, 140: 457-469.
- [19] Wang Q, Bi K, Lei M. Magnetically tunable dual-band transmission through a single subwavelength aperture[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(19): 194102.
- [20] Bi K, Zhu W, Lei M, et al. Magnetically tunable wideband microwave filter using ferrite-based metamaterials[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(17): 173507.
- [21] Zou D, Jiang A, Wu R. Ferromagnetic metamaterial with tunable negative index of refraction [J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107(1): 013507.
- [22] Zhao H, Li B, Zhou J, et al. Abnormal refraction of microwave in ferrite/wire metamaterials [J]. *Optics Express*, 2011, 19(17): 15679-15689.
- [23] Bi K, Guo Y, Zhou J, et al. Negative and near zero refraction metamaterials based on permanent magnetic ferrites[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 4139.
- [24] Gu Y, Wu R, Yang Y, et al. Self-biased magnetic left-handed material [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 102(23): 231914.
- [25] Rachford F J, Armstead D N, Harris V G, et al. Simulations of ferrite-dielectric-wire composite negative index materials[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(5): 057202.
- [26] He P, Gao J, Marinis C T, et al. A microstrip tunable negative refractive index metamaterial and phase shifter[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(19): 193505.
- [27] Bai Y, Zhou J, Sun Y, et al. Effect of electromagnetic environment on the dielectric resonance in the ferroelectric-ferromagnetic composite [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(11): 112907.
- [28] Ciomaga C E, Dumitru I, Mitoseriu L, et al. Magnetolectric ceramic composites with double-resonant permittivity and permeability in GHz range: A route towards isotropic metamaterials[J]. *Scripta Materialia*, 2010, 62(8): 610-612.
- [29] Xu F, Bai Y, Qiao L, et al. Realization of negative permittivity of Co_2Z hexagonal ferrite and left-handed property of ferrite composite material [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(2): 025403.
- [30] McCall M W, Lakhtakia A, Weiglhofer W S. The negative index of refraction demystified[J]. *European Journal of Physics*, 2002, 23(3): 353.
- [31] Boardman A D, King N, Velasco L. Negative refraction in perspective [J]. *Electromagnetics*, 2005, 25(5): 365-389.
- [32] Pimenov A, Loidl A, Gehrke K, et al. Negative refraction observed in a metallic ferromagnet in the gigahertz frequency range[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(19): 197401.
- [33] Yan K, Fan R, Shi Z, et al. Negative permittivity behavior and magnetic performance of perovskite $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ a thigh-frequency[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2014, 2(6): 1028-1033.
- [34] Lan C, Bi K, Zhou J, et al. Experimental demonstration of hyperbolic property in conventional material-ferrite[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(21): 211112.
- [35] Pokrovsky A L, Efros A L. Electrodynamics of metallic photonic crystals and the problem of left-handed materials[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(9): 093901.
- [36] Pokrovsky A L, Efros A L. Pokrovsky and Efros Reply[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 92(11): 119401.
- [37] Marques R, Smith D R. Comment on "Electrodynamics of metallic photonic crystals and the problem of left-handed materials" [J]. *Physical Review Letters*, 2004, 92(5): 059401.
- [38] Bai Y, Xu F, Qiao L. The left-handed property of the composite structure of metallic wires in an anisotropy medium host[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(9): 094101.

Left-handed materials with ferromagnetic medium: A review

LI Yang¹, LIU Chuanbao¹, BAI Yang¹, QIAO Lijie¹, ZHOU Ji²

1. Institute for Advanced Materials and Technology, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

2. School of Materials Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China

Abstract Metamaterials have been a hot issue in the international research community over the past decade, among which the left-handed material (LHM) is the most typical one that possesses simultaneously negative permittivity and permeability and has unique electromagnetic properties. Although the physical nature of the LHM is equivalent to the continuous medium, in fact LHM is made of artificial metal structure and the physical properties are determined by the parameters of the structure rather than the intrinsic property of the material. Utilizing directly the functional materials' intrinsic physical properties which can generate negative electromagnetic parameters so as to obtain the left-handed properties can greatly enrich the physical characteristics of the LHM and jump out of the scope of design of metamaterial, which is also the characteristic research field in the research field of the LHM. There have been many studies on LHM with ferromagnetic medium in recent years. In this article, we will review the progress of LHM with ferromagnetic medium.

Keywords left-handed material; ferromagnetic medium; negative permeability; negative permittivity; negative refractive index

(责任编辑 刘志远)